生态与农村环境学报　2024，40（5）：691-699
Journal of Ecology and Rural Environment

DOI：10.19741/j.issn.1673-4831.2023.0657

李影，徐赵虎，肖雪霞，等.两种四环素类抗生素单一及复合污染对农田土壤理化性质和土壤酶活性的影响[J].生态与农村环境学报，2024，40（5）：691-699.

LI Ying，XU Zhao-hu，XIAO Xue-xia，*et al*.Effects of Single and Combined Pollution of Tetracycline Antibiotics on Physiochemical Properties and Enzyme Activities of Farmland Soil[J].Journal of Ecology and Rural Environment，2024，40（5）：691-699.

两种四环素类抗生素单一及复合污染对农田土壤理化性质和土壤酶活性的影响

李　影[1,2①]，徐赵虎[1]，肖雪霞[1]，曹　颖[1]（1. 安徽师范大学生态与环境学院，安徽 芜湖　241002；2. 皖江流域退化生态系统的恢复与重建省部共建协同创新中心，安徽 芜湖　241002）

摘要：多数农业用地土壤中抗生素含量在 μg·kg^{-1}水平，而 μg·kg^{-1}水平抗生素对土壤质量影响的研究较少，因此开展 0（CK）、10、100 和 500 μg·kg^{-1}土霉素（OTC）和四环素（TC）的单一及复合污染对土壤理化性质和酶活性的影响研究。结果表明：（1）与 CK 相比，两种抗生素单一处理土壤 pH 均显著增加，速效磷（OP）含量均显著降低，且 TC 处理对 pH 的增长率和对 OP 的抑制率均显著高于 OTC 处理，仅 500 μg·kg^{-1} TC 处理可溶性盐显著降低；单一 OTC 处理 OP 含量显著降低，有机质（OM）含量增加，多酚氧化酶（PPO）、脲酶（URE）和蔗糖酶（SUC）活性均显著降低；单一 TC 处理 OP、OM 和有效氮（AN）含量均显著降低，PPO 和 SUC 活性均显著下降。（2）在单一 OTC 处理中加入低含量 TC 能在一定程度上缓解 OTC 对土壤的毒害，以 10 μg·kg^{-1} TC+10 μg·kg^{-1} OTC 处理综合缓解效果为最佳；而加入较高含量 TC 则增大 OTC 对土壤的毒性，且毒性随着 OTC 含量增加呈上升趋势，以 500 μg·kg^{-1} TC+500 μg·kg^{-1} OTC 处理毒性最大；各复合处理组 PPO 活性均被显著抑制，仅 500 μg·kg^{-1} TC+OTC 复合处理 URE 活性被显著抑制。（3）土壤理化因子与土壤酶活性密切相关，pH 是抑制土壤酶活性的关键因子。综上所述，在 μg·kg^{-1}含量水平，单一抗生素处理 TC 毒性整体高于 OTC；低、高含量 TC 与 OTC 复合处理分别表现为拮抗作用和协同抑制效应。

关键词：四环素类抗生素；单一污染；复合污染；土壤理化因子；土壤酶活性

中图分类号：X53；X171.5　　**文献标志码**：A　　**文章编号**：1673-4831（2024）05-0691-09

Effects of Single and Combined Pollution of Tetracycline Antibiotics on Physiochemical Properties and Enzyme Activities of Farmland Soil.

LI Ying[1,2①], *XU Zhao-hu*[1], *XIAO Xue-xia*[1], *CAO Ying*[1]（1. School of Ecology and Environment, Anhui Normal University, Wuhu 241002, China; 2. Collaborative Innovation Center of Recovery and Reconstruction of Degraded Ecosystem in Wanjiang Basin Co-founded by Anhui Province and Ministry of Education, Wuhu 241002, China）

Abstract: Oxytetracycline (OTC) and tetracycline (TC) are emerging contaminants frequently present at their μg·kg^{-1} levels in agricultural lands. The effects of μg·kg^{-1} levels of single and combined pollution of tetracycline antibiotics on soil quality received relatively less attention as yet. In the present study, we spiked 0 (CK), 10, 100 and 500 μg·kg^{-1} of OTC and TC to farmland soil and tested their single and combined effects in terms of soil physiochemical properties and enzyme activities using pot experiments. Results show that (1) OTC and TC both significantly increased soil pH values and decreased the contents of available phosphorus (OP) compared to the control (CK). Meanwhile, the effects of TC on the growth rate of pH and the inhibition rate of OP were significantly higher than OTCs. Single TC treatment only markedly reduced electrical conductivity (EC) at 500 μg·kg^{-1}; single OTC treatment significantly decreased OP content but increased OM content. In addition, the activities of soil polyphenol oxidase (PPO), urease (URE) and sucrase (SUC) in response to single OTC exposure were significantly lower than the CK. In contrast, single TC treatment significantly de-

收稿日期：2023-07-17

基金项目：安徽省高校自然科学基金重点项目（KJ2020A0080）；安徽省高校协同创新项目（GXXT-2020-75）

① 通信作者 E-mail：liying791212@126.com

creased the contents of soil OP, OM and available nitrogen (AN), and reduced the activities of PPO and SUC compared to the control. (2) Addition of low concentration of TC to some extent alleviated the toxic effect of OTC on soil quality, and the optimal mitigation effect was observed at the 10 μg · kg^{-1} TC+10 μg · kg^{-1} OTC treatment. In contrast, the addition of relatively higher concentrations of TC enhanced the toxic effects of OTC on soil quality, and such effects increased with the increasing of OTC concentrations; and the highest toxicity occurred at the 500 μg · kg^{-1} TC+500 μg · kg^{-1} OTC treatment. PPO activity was significantly reduced in all combined treatments compared to the single OTC treatment, but URE activity was only significantly inhibited in the 500 μg · kg^{-1} TC + OTC treatment. (3) The redundancy analysis showed a close correlation between soil physicochemical factors and soil enzyme activities, and pH value could be the key factor that inhibits soil enzyme activity. In summary, the toxicity of TC is higher than OTC at their respective μg · kg^{-1} levels. Low TC levels antagonize and high TC synergize the effect of combined TC and OTC treatments, respectively.

Key words: tetracycline antibiotics; single pollution; combined pollution; soil physicochemical factor; soil enzyme activity

随着集约化养殖业的迅速发展,兽用抗生素得到广泛和大量使用。据统计,我国是世界上最大的抗生素生产国和使用国,兽用抗生素消耗量位居全球之首[1-4]。研究表明,30%~90%的抗生素经动物机体代谢后以原型或代谢产物的形式通过尿液和粪便直接排出体外[4-6]。随着我国有机农业的发展,有机粪肥施用量占施肥总量的 61%~88%,即使对畜禽粪便进行相应处理,抗生素去除效率也并不高,且大部分抗生素因在土壤中难以降解而持久地赋存于土壤中[1,3,7],土壤已成为环境中抗生素的重要汇。

研究表明,抗生素对土壤动植物的生理特性、土壤微生物的群落结构和功能等均可造成较大负面影响,并随时间的积累对土壤生态系统的结构和功能产生重要影响[1,3,5-11]。土壤理化性质和土壤酶影响着土壤中诸多复杂生物化学进程,可表征土壤肥力状况,是衡量土壤生态环境质量的主要因素,且常与土壤污染物之间存在相关性,可作为评价土壤污染的综合性指标[12-13]。有研究发现,鸡粪中四环素类抗生素〔tetracyclines, TCs, 包括四环素(tetracycline, TC)、土霉素(oxytetracycline, OTC)等〕显著降低了土壤有机质、硝态氮、速效磷和速效钾含量,提高土壤 pH,土壤脲酶活性明显被抑制,而过氧化氢酶活性无显著变化[14];猪粪中金霉素(CTC)对土壤速效磷和硝酸盐含量影响不明显,但对铵态氮含量有促进作用[15]。凌德等[16]发现,在 1~200 mg · kg^{-1} OTC 暴露条件下,随着 OTC 含量升高,土壤活性有机碳含量呈递增趋势,土壤脲酶、磷酸酶和转化酶活性均显著下降。JIANG 等[17]发现添加 50 mg · kg^{-1} OTC 显著抑制土壤脲酶和过氧化氢酶活性。周椿富等[18]发现 20 mg · kg^{-1} OTC 在酸、中性土壤中抑制脲酶活性,在碱性土壤中促进脲酶活性。秦俊梅等[19]发现,50 mg · kg^{-1} TC 处理土壤 pH 以及速效磷、碱解氮、有效钾和有机质含量均显著高于对照,土壤过氧化氢酶、脲酶和蔗糖酶活性均被显著抑制。陈敏杰等[20]却发现 10~160 mg · kg^{-1} OTC 和 TC 处理土壤脲酶、过氧化氢酶和酸性磷酸酶活性总体上呈现“低促高抑”的变化趋势。TCs 与重金属复合污染的相关研究表明,强力霉素(doxycycline, DOX)和 Cu 复合污染对土壤脲酶活性表现为促进作用,对蔗糖酶和过氧化氢酶活性主要为抑制作用[21],而 OTC 和 Cd 复合污染显著抑制土壤脲酶和蔗糖酶活性[22]。除此之外,土壤中抗生素还可通过食物链进入人体,长期累积往往导致人体产生耐药性;同时,环境中抗生素的存在促进了抗生素抗性基因(antibiotic resistance genes, ARGs)的产生和传播,严重威胁全球公共卫生[23-25]。

目前,我国农用土壤抗生素检出率非常高,检出的抗生素种类众多,但检出含量总体上较低[3,8,26-27]。与其他抗生素相比,TCs 在土壤中吸附性强、难以降解且存在持久,具有检出率(最高达 100%)高、检出浓度变化范围(μg · kg^{-1}~mg · kg^{-1} 水平)较大等特点,个别四环素类抗生素检测水平超过国际规定的毒害限量标准(100 μg · kg^{-1})[3,5,24,26]。调查研究表明,我国长三角地区土壤抗生素残留问题尤为突出,在一些邻近养殖场的菜地或大批量施用禽畜粪便等土壤中检测到 TCs 含量达到 mg · kg^{-1} 水平[27]。除了这些特殊场景外,长三角地区多数农田、园地和林地土壤中 TCs 检测含量在 ND~809 μg · kg^{-1} 范围,其中,TC 和 OTC 最大检测含量分别为 197 和 530 μg · kg^{-1}[11,28]。四环素类抗生素在环境中的检测频率、检测含量、空间分布及风险评估已成为研究热点[3,5,26-29]。尽管有关 TCs 对土壤理化性质和土壤酶活性的影响研究较多,但大多针对高含量(mg · kg^{-1} 水平)单种抗生素或抗生素与重金属复合污染的生态环境效应。由

于多数土壤中抗生素含量处于 μg · kg^{-1}水平，且常常同时存在多种抗生素，因此，有必要开展低含量（μg · kg^{-1}水平）抗生素复合污染对土壤生态环境影响的研究。

考虑到 TCs 在长三角地区非特殊场景土壤实际检测含量，通过室内模拟试验，人为添加 TC 和 OTC 研究 μg · kg^{-1}含量水平 TC 和 OTC 单一及复合污染对农田土壤理化性质和土壤酶活性的影响，以期进一步完善抗生素复合污染土壤生态毒理效应研究，为探讨四环素类抗生素污染土壤生态环境效应和环境风险提供理论依据。

1　材料与方法

1.1　供试材料

供试土壤采集自安徽省芜湖市南陵县无公害水稻标准化生产基地的农田表层土壤（0～20 cm），土壤样品于室内自然风干。土壤基本理化性质：pH 值为 7.61±0.03，有机质含量为（23.57±0.58）g · kg^{-1}，有效氮含量为（0.08±0.03）g · kg^{-1}，经检测，供试土壤无重金属污染，且未检测出抗生素污染。TC 和 OTC 原药（分析纯，纯度大于 98%）购于安徽省天根生化科技有限公司。

1.2　试验设计

将风干后的供试土壤分别装入塑料盆（口径 23 cm×高度 18 cm）中，每盆装土约 2.0 kg，以水溶液形式一次性加入不同浓度 TC 和 OTC 溶液，并与土壤充分混合，TC 和 OTC 单一和复合处理含量见表 1。以加入同体积蒸馏水土壤作为对照（CK）。各处理均设 3 个重复，用纤维膜密封。为确保通风，减少水分蒸发，试验期间保持 25 ℃ 和土壤含水率为 25% 的田间最大持水量恒温恒湿培养条件，处理时间持续 40 d[30]。

1.3　土壤理化性质的测定

40 d 后收集土壤，自然风干研磨过 2 mm 孔径筛，低温保存备用。采用四分法取土样，保存在 -20 ℃ 冰箱中待测。采用常规方法分析测量土壤 pH、可溶性盐（electrical conductivity，EC）以及有机质（organic matter，OM）、速效磷（Olsen-P，OP）和有效氮（available nitrogen，AN）含量 5 个基本土壤理化性质[31-32]。

1.4　土壤酶活性测定分析

土壤蔗糖酶活性、过氧化氢酶活性、脲酶活性和多酚氧化酶活性分别采用 3，5-二硝基水杨酸比色法、碘量滴定法、苯酚-次氯酸钠比色法和邻苯三酚法测定[33-34]。

表 1　TC 和 OTC 处理水平设置

Table 1　Setting of TC and OTC treatment level

处理	抗生素含量/（μg · kg^{-1}）	
	TC	OTC
CK	0	0
TC1	10	0
TC2	100	0
TC3	500	0
OTC1	0	10
OTC2	0	100
OTC3	0	500
TC1+OTC1	10	10
TC1+OTC2	10	100
TC1+OTC3	10	500
TC2+OTC1	100	10
TC2+OTC2	100	100
TC2+OTC3	100	500
TC3+OTC1	500	10
TC3+OTC2	500	100
TC3+OTC3	500	500

TC1、TC2 和 TC3 表示 TC 含量分别为 10、100 和 500 μg · kg^{-1}，OTC1、OTC2 和 OTC3 表示 OTC 含量分别为 10、100 和 500 μg · kg^{-1}。

1.5　数据处理与统计分析

各处理组相关指标数据用平均值±标准误差（mean±SE）表示。采用 SPSS 22.0 软件单因素方差分析（one-way ANOVA）和 LSD 多重比较法进行差异显著性检验。采用 CANOCO 5.0 软件对土壤酶活性-土壤理化因子间关系进行降趋势对应分析（discriminant component analysis，DCA）和冗余分析（redundancy analysis，RDA）。

2　结果与分析

2.1　四环素和土霉素单一及复合污染对农田土壤基本理化性质的影响

由表 2 可知，随着单一 TC（TC1～TC3）和单一 OTC（OTC1～OTC3）处理水平增加，土壤 pH 均显著升高（$P<0.05$），平均增长率分别为 6.50% 和 5.05%，而 OP 含量均显著降低（$P<0.05$），且抑制率随抗生素含量增加而显著上升，平均抑制率分别为 24.98% 和 21.99%。与 CK 相比，单一 OTC 处理土壤 EC 和 AN 含量均无显著差异（$P>0.05$），OM 含量均显著升高（$P<0.05$），且增长率随 OTC 含量增加呈上升趋势，平均增长率为 34.94%；单一 TC 暴露条件下，与 CK 相比，仅 TC3 处理土壤 EC 显著降低，抑制率为 17.31%，TC1～TC2 处理无显著差异（$P>0.05$），TC2～TC3 处理土壤 OM 和 AN 含量均显著降低（$P<0.05$），最高抑制率分别达 46.84% 和 50.00%。

与单一 OTC 处理相比,TC1 和 3 种水平 OTC 复合处理土壤 pH 和 EC 含量均无显著变化($P>0.05$),仅 TC1+OTC3 处理 OM 含量较 OTC3 处理有显著下降($P<0.05$),但 OP 和 AN 含量均呈不同程度提升或维持,其中,TC1+OTC1 处理综合提升效果最佳,OM、OP 和 AN 含量较 OTC1 处理分别显著增加 12.54%、36.46% 和 18.75%。与单一 OTC 处理相比,TC2、TC3 和 3 种水平 OTC 复合处理能够不同程度降低土壤 EC、OM、OP 和 AN 含量,提升土壤 pH,且降幅或增幅均随 OTC 含量增加而上升,其中,TC3+OTC3 处理受抑制程度最大,相较于 OTC3 处理,pH 显著升高 3.47%,EC、OM、OP 和 AN 含量分别显著降低 28.57%、54.83%、34.37% 和 78.57%。

综合来看,土壤 pH 和 OP 含量对 OTC、TC 单一及复合污染较为敏感,而 EC 敏感性最弱。

表 2 TC 和 OTC 单一及复合污染对农田土壤理化性质的影响

Table 2 Effects of single and combined TC and OTC stress on physico-chemical properties of soil

处理	pH	可溶性盐/(mS·cm^{-1})	w(有机质)/(g·kg^{-1})	w(速效磷)/(mg·kg^{-1})	w(有效氮)/(g·kg^{-1})
CK	7.39±0.12^{a}	1.04±0.06^{a}	16.61±0.99^{a}	47.62±1.10^{a}	0.070±0.005^{a}
TC1	7.76±0.10^{b}	0.97±0.12^{a}	14.29±0.73^{a}	42.86±0.96^{b}	0.081±0.008^{a}
TC2	7.89±0.03^{c}	0.90±0.04^{a}	9.67±0.25^{d}	35.10±0.64^{c}	0.063±0.007^{c}
TC3	7.96±0.06^{e}	0.86±0.03^{b}	8.83±0.39^{d}	29.21±0.65^{d}	0.035±0.010^{d}
OTC1	7.66±0.11^{b}	1.07±0.02^{a}	20.17±0.93^{b}	40.32±0.68^{b}	0.080±0.007^{a}
OTC2	7.85±0.05^{c}	0.96±0.09^{a}	21.01±0.67^{b}	38.10±1.16^{b}	0.071±0.006^{a}
OTC3	7.78±0.03^{d}	0.91±0.04^{a}	26.06±0.88^{c}	33.02±0.90^{c}	0.070±0.006^{a}
TC1+OTC1	7.76±0.11^{b}	1.10±0.12^{a}	22.70±0.95^{b}	53.02±1.50^{e}	0.095±0.009^{e}
TC1+OTC2	7.82±0.08^{c}	1.05±0.05^{a}	20.07±0.98^{b}	49.21±0.82^{a}	0.073±0.007^{a}
TC1+OTC3	7.83±0.04^{c}	0.95±0.06^{a}	21.01±0.77^{b}	38.07±0.90^{b}	0.068±0.007^{a}
TC2+OTC1	7.89±0.02^{c}	1.06±0.01^{a}	21.01±0.88^{b}	42.54±0.85^{b}	0.049±0.009^{f}
TC2+OTC2	7.92±0.02^{e}	0.94±0.05^{a}	17.65±0.83^{a}	39.37±0.64^{b}	0.035±0.005^{d}
TC2+OTC3	7.87±0.08^{c}	0.85±0.01^{b}	15.97±0.59^{a}	32.86±0.60^{c}	0.031±0.007^{d}
TC3+OTC1	7.91±0.03^{c}	0.95±0.03^{a}	14.29±0.59^{a}	30.32±0.74^{d}	0.037±0.007^{d}
TC3+OTC2	7.91±0.03^{c}	0.85±0.06^{b}	16.37±0.58^{a}	29.27±1.03^{d}	0.028±0.008^{h}
TC3+OTC3	8.05±0.04^{e}	0.65±0.06^{d}	11.77±0.95^{e}	21.67±0.53^{f}	0.015±0.009^{g}

TC1、TC2 和 TC3 表示 TC 含量分别为 10、100 和 500 μg·kg^{-1},OTC1、OTC2 和 OTC3 表示 OTC 含量分别为 10、100 和 500 μg·kg^{-1}。同一列数据后英文小写字母不同表示各处理间某指标差异显著($P<0.05$)。

2.2 四环素和土霉素单一及复合污染对农田土壤酶活性的影响

由表 3 可知,与 CK 相比,OTC、TC 单一处理土壤过氧化氢酶(CAT)活性均呈上升趋势,但均未达到显著水平($P>0.05$)。单一 OTC(OTC1~OTC3)处理多酚氧化酶(PPO)、脲酶(URE)和蔗糖酶(SUC)活性均显著低于 CK($P<0.05$),抑制率平均分别为 46.6%、34.25% 和 90.42%,其中,URE 和 SUC 活性抑制率均随着 OTC 含量升高而上升。相较于 CK,单一 TC(TC1~TC3)处理 PPO 活性均显著降低($P<0.05$),抑制率平均为 83.72%,但 TC1~TC3 处理间无显著差异($P>0.05$);TC1~TC3 处理 SUC 活性也均显著低于 CK($P<0.05$),抑制率平均为 86.79%,且高含量的 TC3 处理显著最低,而 TC2 与 TC1 处理间无显著差异($P>0.05$);仅 TC3 处理 URE 活性显著低于 CK,抑制率为 41.28%,而 TC1 和 TC2 处理与 CK 间均无显著差异($P>0.05$)。

与单一 OTC 处理相比,TC1、TC2 和 TC3 与 3 种水平 OTC 复合处理土壤 PPO 活性均显著下降($P<0.05$),平均降幅分别为 83.40%、72.18% 和 76.69%;仅 TC3+OTC3 处理土壤 CAT 和 SUC 活性被显著抑制($P<0.05$),降幅分别为 19.35% 和 73.68%,其他复合处理 CAT 活性均无明显变化($P>0.05$),SUC 活性则均不同程度被激活,增幅在 13.00%~284.21%。与单一 OTC 处理相比,TC1 和 TC2 与 3 种水平 OTC 复合处理土壤 URE 活性均不同程度提升或维持,增幅为 8.11%~42.11%,但各复合处理组间以及 TC1+OTC1 和 TC2+OTC1 处理与 OTC1 处理间均无显著差异($P>0.05$);TC3 和 OTC1~OTC3 复合处理 URE 活性均显著降低($P<0.05$),降幅为 5.41%~26.32%,且 TC3+OTC3 处理 URE 活性最低。

综合来看,4 种土壤酶对 OTC、TC 单一及复合污染处理敏感顺序依次为 SUC>PPO>URE>CAT。

表 3　TC 和 OTC 单一及复合污染对土壤酶活性的影响

Table 3　Effects of single and combined TC and OTC stress on soil enzyme activities

处理	过氧化氢酶活性/(mg · g^{-1})	多酚氧化酶活性/(mg · g^{-1})	蔗糖酶活性/(mg · g^{-1})	脲酶活性/(mg · g^{-1})
CK	3.07±0.04^{a}	6.02±0.07^{a}	5.88±0.08^{a}	1.09±0.09^{a}
TC1	3.09±0.07^{a}	0.98±0.02^{d}	1.18±0.05^{d}	0.97±0.06^{a}
TC2	3.10±0.08^{a}	0.98±0.01^{d}	1.01±0.05^{d}	1.05±0.04^{a}
TC3	3.10±0.04^{a}	0.98±0.02^{d}	0.14±0.05^{g}	0.64±0.02^{c}
OTC1	3.12±0.02^{a}	3.92±0.04^{b}	1.15±0.09^{d}	0.84±0.05^{b}
OTC2	3.10±0.03^{a}	2.81±0.02^{c}	0.35±0.10^{f}	0.74±0.01^{c}
OTC3	3.10±0.05^{a}	2.94±0.03^{c}	0.19±0.01^{g}	0.57±0.03^{d}
TC1+OTC1	3.10±0.09^{a}	0.75±0.04^{d}	4.19±0.16^{b}	0.79±0.01^{b}
TC1+OTC2	3.05±0.01^{a}	0.46±0.03^{e}	1.01±0.12^{d}	0.80±0.01^{b}
TC1+OTC3	3.00±0.10^{a}	0.42±0.02^{e}	0.73±0.10^{e}	0.77±0.01^{b}
TC2+OTC1	3.10±0.09^{a}	0.98±0.05^{d}	1.31±0.15^{d}	0.79±0.02^{b}
TC2+OTC2	3.05±0.08^{a}	0.84±0.04^{d}	0.63±0.20^{e}	0.79±0.01^{b}
TC2+OTC3	3.01±0.20^{a}	0.84±0.04^{d}	0.71±0.10^{e}	0.81±0.05^{b}
TC3+OTC1	3.00±0.10^{a}	0.84±0.04^{d}	2.29±0.04^{c}	0.70±0.02^{c}
TC3+OTC2	3.00±0.08^{a}	0.56±0.04^{e}	0.84±0.06^{e}	0.70±0.09^{c}
TC3+OTC3	2.50±0.20^{b}	0.84±0.05^{d}	0.05±0.02^{h}	0.42±0.01^{e}

TC1、TC2 和 TC3 表示 TC 含量分别为 10、100 和 500 μg · kg^{-1}，OTC1、OTC2 和 OTC3 表示 OTC 含量分别为 10、100 和 500 μg · kg^{-1}。同一列数据后英文小写字母不同表示各处理间某指标差异显著(P<0.05)。

2.3　农田土壤酶活性与土壤理化因子之间的冗余分析

DCA 分析结果中第 1 轴梯度值(lengths of gradient)小于 3，因此选择 RDA 分析评价土壤酶活性与土壤理化性质(pH、EC、OM、AN 和 OP)之间相关性。RDA 分析结果显示，轴 1 和轴 2 累计解释率均达 80%以上(表 4)，这说明 RDA 排序图能很好地解释土壤酶活性与土壤理化性质的相关关系。由图 1 可知，pH 与 4 种土壤酶活性之间呈显著负相关；SUC、CAT 和 URE 活性与有效氮、速效磷和电导率间均呈显著正相关，PPO 活性与有机质间呈极显著正相关。

表 4　土壤酶活性与土壤理化因子间的 RDA 分析

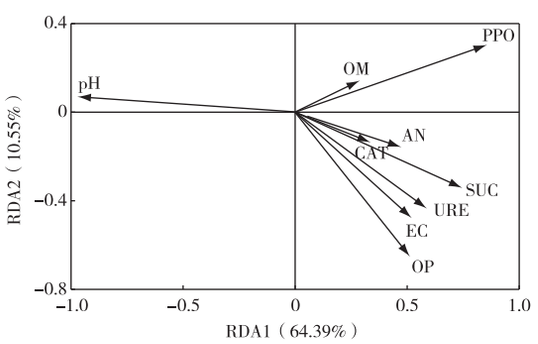
Table 4　RDA analysis of the relationship between soil enzyme activity and soil physicochemical factors

指标	特征值	土壤酶-理化因子相关系数	土壤酶累计变异百分比/%	土壤酶-理化因子累计变异百分比/%
轴 1	0.644	0.931	64.39	85.60
轴 2	0.106	0.653	74.94	99.63
轴 3	0.002	0.555	75.15	99.91
轴 4	0.001	0.453	75.22	100.00

3　讨论

3.1　土霉素和四环素单一及复合污染对土壤理化性质的影响

四环素类抗生素分子中均含有较多的易电离官能团羧基(—COOH)，多种机理共同作用使其具有较强被吸附能力，与土壤亲和力强，不易降解[5,8,20,35]。四环素类抗生素被吸附在土壤中后，自身可以作为碳源增加微生物活性，同时它还可以通过影响土壤微生物活性、多样性、群落结构和功能等，直接或间接改变土壤理化性质和土壤酶活性[18,20,35-37]。



PPO 为多酚氧化酶，CAT 为过氧化氢酶，URE 为脲酶，SUC 为蔗糖酶，EC 为可溶性盐，OM 为有机质，AN 为有效氮，OP 为速效磷。

图 1　土壤酶活性与土壤理化因子间的冗余分析

Fig. 1　Redundancy analysis between soil enzyme activities and soil physicochemical factors

笔者研究中 OTC、TC 单一及复合处理土壤 pH 均显著高于 CK，土壤呈碱化趋势，这与秦俊梅等[19]和于晓雯等[14]研究结果一致，其可能原因是四环素类抗生素抑制或杀死一些土壤微生物，尤其可能抑制酸杆菌门细菌活性，使其无法正常分泌有机酸，从而使土壤 pH 值升高[14,35-36]。但韩旭[38]研究发

现,单施磺胺甲恶唑(SMZ)对土壤 pH 影响不显著,笔者研究结果与之有差异,这也说明不同类型和含量抗生素对土壤 pH 的影响作用存在差异,抗生素胁迫条件下土壤 pH 变化机制尚有待深入研究。笔者发现各抗生素处理土壤 OP 含量均显著低于 CK,这与于晓雯等[14]发现鸡粪中 TCs 能显著降低土壤 OP 含量的结果一致,而与秦俊梅等[19]发现 TC 处理和 STONE 等[15]发现 CTC 处理对 OP 含量影响均不显著的结果存在差异;单一 OTC 处理显著促进土壤 OM 含量升高,对 AN 含量无明显作用,这与凌德等[16]研究结果基本一致,而单一 TC 处理却显著抑制 OM 和 AN 含量,这与于晓雯等[14]研究结果基本一致,但与秦俊梅等[19]发现 TC 处理显著促进 OM 和 AN 含量的研究结果存在差异。上述研究结果间的差异可能与抗生素类型及供试抗生素含量有关,也可能与试验选用的土壤类型和土壤微生物群落差异较大有关,四环素类抗生素在不同土壤中赋存特性和反应存在一定差异,从而对土壤养分的表现作用也不同[39]。

此外,笔者研究发现,单一 TC 处理对 pH 的平均增长率和对 OP 含量的平均抑制率均显著高于单一 OTC 处理,结合 OM 和 AN 含量变化情况来看,整体上,TC 处理对土壤理化性质的抑制作用高于 OTC 处理,这反映 TC 暴露对土壤生态环境的毒性高于 OTC,其可能原因与这两种抗生素在土壤中的半衰期和降解速率差异有关。有报道发现鸡粪中 OTC 和 TC 在棕壤中的半衰期分别为 26.80 和 63.24 d[40],且早期 OTC 降解速率要高于 TC[41],而笔者研究培养时间为 40 d,导致试供土壤中 OTC 降解程度可能高于 TC,使得 TC 在土壤中滞留时间更长,对土壤微生物的毒害效应更久,从而造成 TC 毒性强于 OTC。

目前有关重金属-抗生素复合污染对土壤生态环境影响的研究较多,其主要原因可能与重金属与抗生素发生络合反应有关[21-22],而有关不同种类抗生素复合污染生态效应的研究相对较少。笔者研究发现,相比单一 OTC 处理,10 μg · kg^{-1} TC 与 3 种水平 OTC 复合处理能不同程度提升土壤 OP、AN 和 OM 含量,其中,TC1+OTC1 处理综合提升效果最佳,说明低含量 TC 与 OTC 复合处理对土壤理化性质表现出较为明显的拮抗作用。究其原因,一方面可能是由于低含量 TC 与 OTC 对土壤微生物存在竞争吸附,促进土壤微生物代谢多样性[21,42];另一方面,10 μg · kg^{-1} 抗生素远低于毒害限量标准(100 μg · kg^{-1}),土壤微生物易适应添加低含量抗生素土壤环境,低含量抗生素可能转变为微生物碳源,反而促进微生物活性,同时微生物可能会加快抗生素降解,从而降低抗生素毒害作用[22,43]。笔者研究中,TC2 和 TC3 与 3 种水平 OTC 复合处理均不同程度增强单一抗生素处理对土壤生态系统的毒害作用,且这种毒害效应随着 OTC 水平增加呈上升趋势,TC3+OTC3 处理综合抑制程度达到最大,土壤 pH 均显著高于以及 EC、OM、OP 和 AN 含量均显著低于相应单一 OTC 处理组,这说明高含量 TC 和 OTC 复合暴露对土壤理化性质整体上表现出协同作用。阮琳琳等[42]研究发现,10~20 mg · kg^{-1} 磺胺二甲嘧啶(SM2)和强力霉素(DOX)共存时短期内会抑制彼此降解。笔者研究中可能也存在类似现象,当高含量 TC 和 OTC 共存时可能降低彼此降解,因此经过 40 d 处理后,高起始浓度的两种抗生素复合处理的残留含量可能高于对应浓度的单一抗生素处理的残留含量,导致高含量复合抗生素处理土壤微生物受毒害作用更加显著,从而加剧土壤理化性质被抑制程度。

3.2 土霉素和四环素单一及复合污染对土壤酶活性的影响

土壤酶参与土壤中各种复杂生物学和生物化学反应,可表征土壤肥力和土壤自净能力。有研究[37,43-44]表明,土壤酶活性受抗生素类型、含量和暴露时间的共同影响。过氧化氢酶(CAT)属于氧化还原酶,它的活性反映土壤呼吸作用和微生物生命活动的强弱[43]。笔者研究中,OTC 和 TC 单一及复合处理(除 TC3+OTC3 处理外)土壤 CAT 活性与 CK 间均无显著差异,这与陈敏杰等[20]对 1 000 μg · kg^{-1} TC 处理,张文婕等[43]对 0.05 ~ 0.2 mmol · kg^{-1} OTC 处理,以及于晓雯等[14]对 500 μg · kg^{-1} 四环素类混合添加处理的结果均一致,但与 JIANG 等[17]和秦俊梅等[19]对 50 mg · kg^{-1} OTC 和 TC 处理土壤 CAT 活性显著降低的结果有所不同。研究结果间的差异一方面可能与供试抗生素含量不同有关,土壤微生物对低含量抗生素会产生忍耐力和适应性,导致低含量抗生素对土壤 CAT 活性影响不显著,而高含量抗生素处理显著抑制土壤 CAT 活性;另一方面可能是由于四环素类抗生素生物化学氧化反应产生大量过氧化氢,土壤中需氧生物为了防止被过氧化而需要提高 CAT 活性来解除过氧化氢毒害,使得土壤 CAT 活性能持续升高或维持一定水平[45]。

多酚氧化酶(PPO)是土壤中重要的氧化还原酶,能够参与芳香族类化合物的分解转化过程,并

可促进木质素和酚类化合物的分解，而后形成类腐殖质的大分子化合物[46-47]。笔者研究中，OTC 和 TC 单一和复合处理 PPO 活性均显著降低，这与林琳等[46]研究结果基本一致。PPO 活性降低可能是由于其参与分解转化土壤中 TCs。此外，笔者研究发现两种 TCs 单一处理土壤 PPO 活性均显著低于 CK，而此时土壤 OM 含量也显著低于 CK。同时，RDA 分析结果表明 PPO 活性与土壤 OM 呈显著正相关，这说明两种 TCs 处理可能抑制微生物活性，导致土壤 PPO 活性显著减弱，从而降低土壤 OM 含量。土壤蔗糖酶（SUC，转化酶）的酶促作用产物与土壤中营养元素（如 OM、N 和 P）含量、微生物数量及土壤呼吸强度密切相关，对于增加土壤中易溶解营养物质起重要作用，在与 SUC 活性呈显著相关的土壤理化性质（如 OM、OP 含量等）中，OP 含量不仅与 SUC 活性呈极显著正相关且相关系数最大[37]。笔者研究中，OTC 和 TC 单一及复合处理 SUC 活性均显著低于 CK，这与秦俊梅等[19]研究结果一致，这可能是因为一方面 TCs 抑制土壤微生物代谢活性，导致 SUC 活性下降；另一方面 TC 可能进入蔗糖酶分子中，与酶分子结合形成稳定络合物，酶活性降低，从而表现出对 SUC 活性的抑制作用。此外，笔者研究中土壤理化因子与土壤酶活性的 RDA 分析结果也表明 OP 含量与 SUC 活性呈显著正相关，与相关研究结果[37]一致。脲酶（URE）是一种酰胺水解酶，在土壤中主要来自于植物和微生物，其在氮肥利用和土壤氮素代谢方面有重要意义[33]。OTC 和 TC 单一和复合处理土壤 URE 活性低于或者显著低于 CK，这与相关文献报道[14,16-17,19,45]较为相似。这可能是由于 TCs 进入土壤后与土壤酶分子中活性部位（如巯基和含咪唑的配位体）结合形成较稳定的络合物，抑制酶的活性中心，从而降低酶活性。

需要说明的是，笔者研究中 OTC 和 TC 复合处理对土壤酶活性的影响不同于对土壤理化性质的作用。OTC 和 TC 复合处理对土壤酶活性的影响机制较为复杂，在低含量复合处理时整体表现为拮抗作用（TC1+OTC1 处理拮抗作用尤为突出），在高含量复合处理时整体表现为协同抑制作用（TC3+OTC3 处理组协同作用尤为突出）。相比于单一 OTC 处理，仅 TC3+OTC3 处理土壤 CAT 和 SUC 活性显著降低，其他复合处理酶活性均不同程度被激活，尤其以 SUC 活性上升最为显著，此时 OTC 与 TC 之间表现为拮抗作用，这与闫雷等[22]研究结果相类似；TC1、TC2 与 OTC2、OTC3 复合处理土壤 URE 活性均显著升高，两者之间表现为拮抗作用；而 TC3 与 OTC1～OTC3 复合处理土壤 URE 活性均明显被抑制，TC3+OTC3 处理显著最低，两者之间表现为协同抑制作用；各复合处理 PPO 活性均显著降低，两者之间表现为协同抑制作用。这说明四环素类抗生素复合污染对土壤酶活性的影响与土壤酶类型和抗生素含量有关。由于 TCs 具有酰胺键结构，而 URE 以酰胺键为底物，根据底物诱导原理，TCs 对 URE 的激活效应大于抑制效应，但高含量 TCs 更易于与 URE 分子形成结合位点而抑制酶活性[22,48]，因此高含量 TC 与 OTC 复合处理更有利于抗生素与 URE 结合，形成低活性的稳定络合物，从而抑制 URE 活性。

4　结论

（1）单一抗生素污染条件下，TC 毒性总体上高于 OTC。

（2）复合污染条件下，低含量（10 μg · kg^{-1}）TC 可以在一定程度上缓解单一 OTC 污染对土壤生态系统的毒害作用，以 TC1+OTC1 处理（10 μg · kg^{-1} TC+10 μg · kg^{-1} OTC）综合缓解效果为最佳。较高含量 TC 会增强 OTC 对土壤生态系统的毒害作用，且随着 OTC 水平增加呈上升趋势，以 TC3+OTC3 处理（500 μg · kg^{-1} TC+500 μg · kg^{-1} OTC）受抑制程度为最大。

（3）低含量 TC 与 OTC 复合污染整体表现为拮抗作用，而高含量 TC 与 OTC 产生协同抑制作用。

（4）土壤 pH 与 4 种土壤酶活性均呈显著负相关，是抑制土壤酶活性的重要环境因子。

参考文献：

[1] 何玉洁，周凯萍，饶怡璇，等.土壤中抗生素的环境风险及污染土壤的生物修复技术[J].生物工程学报，2021，37(10)：3487-3504.[HE Yu-jie，ZHOU Kai-ping，RAO Yi-xuan，*et al*.Environmental Risks of Antibiotics in Soil and the Related Bioremediation Technologies[J]. Chinese Journal of Biotechnology，2021，37(10)：3487-3504.]

[2] KLEIN E Y，VAN BOECKEL T P，MARTINEZ E M，*et al*.Global Increase and Geographic Convergence in Antibiotic Consumption between 2000 and 2015[J].Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America，2018，115(15)：E3463-E3470.

[3] 孔晨晨，张世文，聂超甲，等.农用地土壤抗生素组成特征与积累规律[J].环境科学，2019，40(4)：1981-1989.[KONG Chen-chen，ZHANG Shi-wen，NIE Chao-jia，*et al*.Composition，Characteristics，and Accumulation of Antibiotics in the Soil in Agricultural Land[J].Environmental Science，2019，40(4)：1981-1989.]

[4] 周际海，黄荣霞，樊后保，等.污染土壤修复技术研究进展[J].水土保持研究，2016，23(3)：366-372.[ZHOU Ji-hai，HUANG

Rong-xia, FAN Hou-bao, *et al*. A Review on the Progresses of Remediation Technologies for Contaminated Soils[J]. Research of Soil and Water Conservation, 2016, 23(3): 366-372.]

[5] 徐向月, 马文瑾, 安博宇, 等. 四环素类抗生素在环境中的风险评估研究进展[J]. 中国畜牧兽医, 2020, 47(3): 948-957. [XU Xiang-yue, MA Wen-jin, AN Bo-yu, *et al*. Advances on Risk Assessment of Tetracycline Antibiotics in the Environment[J]. China Animal Husbandry & Veterinary Medicine, 2020, 47(3): 948-957.]

[6] DAGHRIR R, DROGUI P. Tetracycline Antibiotics in the Environment: A Review[J]. Environmental Chemistry Letters, 2013, 11(3): 209-227.

[7] JAGTAP U B. Antibiotics in the Soil: Sources, Environmental Issues, and Bioremediation[M]// HASHMI M Z, STREZOV V, VARMA A. Antibiotics and Antibiotics Resistance Genes in Soils. Cham: Springer, 2017: 387-395.

[8] 曾巧云, 丁丹, 檀笑. 中国农业土壤中四环素类抗生素污染现状及来源研究进展[J]. 生态环境学报, 2018, 27(9): 1774-1782. [ZENG Qiao-yun, DING Dan, TAN Xiao. Pollution Status and Sources of Tetracycline Antibiotics in Agricultural Soil in China: A Review[J]. Ecology and Environmental Sciences, 2018, 27(9): 1774-1782.]

[9] ROCHAD C, DA SILVA ROCHA C, TAVARES D S, *et al*. Veterinary Antibiotics and Plant Physiology: An Overview[J]. The Science of the Total Environment, 2021, 767: 144902.

[10] 熊小波, 孙博琳, 秦静婷, 等. 磺胺甲恶唑对赤子爱胜蚓肠道微生物群落的影响[J]. 环境科学学报, 2020, 40(11): 4207-4214. [XIONG Xiao-bo, SUN Bo-lin, QIN Jing-ting, *et al*. Effects of Sulfamethoxazole on *Eisenia fetida* Gut Microbiota[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2020, 40(11): 4207-4214.]

[11] GRENNI P, ANCONA V, BARRA CARACCIOLO A. Ecological Effects of Antibiotics on Natural Ecosystems: A Review[J]. Microchemical Journal, 2018, 136: 25-39.

[12] CALDWELLB A. Enzyme Activities as a Component of Soil Biodiversity: A Review[J]. Pedobiologia, 2005, 49(6): 637-644.

[13] 应蓉蓉, 张晓雨, 孔令雅, 等. 农用地土壤环境质量评价与类别划分研究[J]. 生态与农村环境学报, 2020, 36(1): 18-25. [YING Rong-rong, ZHANG Xiao-yu, KONG Ling-ya, *et al*. Technical Analysis of Soil Environmental Quality Evaluation and Category Classification of Agricultural Land[J]. Journal of Ecology and Rural Environment, 2020, 36(1): 18-25.]

[14] 于晓雯, 索全义, 史李萍. 外源四环素类抗生素对土壤微生物多样性的影响[J]. 北方园艺, 2021(2): 91-96. [YU Xiao-wen, SUO Quan-yi, SHI Li-ping. Effects of Exogenous Tetracycline Antibiotics on Soil Microbial Diversity[J]. Northern Horticulture, 2021(2): 91-96.]

[15] STONE J J, DREIS E K, LUPO C D, *et al*. Land Application of Tylosin and Chlortetracycline Swine Manure: Impacts to Soil Nutrients and Soil Microbial Community Structure[J]. Journal of Environmental Science and Health Part B: Pesticides, Food Contaminants, and Agricultural Wastes, 2011, 46(8): 752-762.

[16] 凌德, 李婷, 张世熔, 等. 外源土霉素和磺胺二甲嘧啶对土壤活性有机碳含量的影响[J]. 农业环境科学学报, 2015, 34(2): 297-302. [LING De, LI Ting, ZHANG Shi-rong, *et al*. Effects of Exogenetic Oxytetracycline and Sulfamethazine on Soil Labile Organic Carbon Contents[J]. Journal of Agro-environment Science, 2015, 34(2): 297-302.]

[17] JIANG W Q, GAO J, CHENG Z, *et al*. The Effect of Antibiotics on the Persistence of Herbicides in Soil under the Combined Pollution[J]. Chemosphere, 2018, 204: 303-309.

[18] 周椿富, 于锐, 王翔, 等. 抗生素对不同土壤中酶活性的影响[J]. 生态环境学报, 2022, 31(11): 2234-2241. [ZHOU Chun-fu, YU Rui, WANG Xiang, *et al*. Effects of Antibiotics on Soil Enzyme Activities in Different Soils[J]. Ecology and Environmental Sciences, 2022, 31(11): 2234-2241.]

[19] 秦俊梅, 李嘉欣, 宋建丽, 等. 不同修复基质对外源四环素污染土壤酶活性及微生物量碳氮的影响[J]. 应用与环境生物学报, 2021, 27(6): 1500-1508. [QIN Jun-mei, LI Jia-xin, SONG Jian-li, *et al*. Effects of Different Remediation Substrates on Enzyme Activities, Microbial Biomass Carbon, and Nitrogen in Soil Contaminated by Exogenous Tetracycline[J]. Chinese Journal of Applied and Environmental Biology, 2021, 27(6): 1500-1508.]

[20] 陈敏杰, 钱懿宏, 于青燕, 等. 典型四环素类抗生素对土壤微生物及植物生长的影响[J]. 生态毒理学报, 2019, 14(6): 276-283. [CHEN Min-jie, QIAN Yi-hong, YU Qing-yan, *et al*. Effects of Typical Tetracycline Antibiotics on Soil Microorganisms and Plant Growth[J]. Asian Journal of Ecotoxicology, 2019, 14(6): 276-283.]

[21] 陈欣瑶, 肖祖飞, 祝妍华, 等. 铜和强力霉素复合污染对土壤微生物与酶活性的影响[J]. 土壤学报, 2021, 58(4): 957-967. [CHEN Xin-yao, XIAO Zu-fei, ZHU Yan-hua, *et al*. Impacts of Combined Pollution of Copper and Doxycycline on Activities of Soil Microbes and Enzymes[J]. Acta Pedologica Sinica, 2021, 58(4): 957-967.]

[22] 闫雷, 毕世欣, 赵启慧, 等. 土霉素及镉污染对土壤呼吸及酶活性的影响[J]. 水土保持通报, 2014, 34(6): 101-108. [YAN Lei, BI Shi-xin, ZHAO Qi-hui, *et al*. Effects of Oxytetracycline and Cd Pollution on Soil Respiration and Enzyme Activity[J]. Bulletin of Soil and Water Conservation, 2014, 34(6): 101-108.]

[23] 李书唱, 倪妮, 王娜, 等. 我国土壤中抗生素抗性基因污染的消减策略[J]. 生态与农村环境学报, 2024, 40(5): 589-601. [LI Shu-chang, NI Ni, WANG Na, *et al*. Reduction Strategy of Antibiotic Resistance Gene Pollution in Soil of China[J]. Jounal of Ecology and Rural Environment, 2024, 40(5): 589-601.]

[24] LYU J, YANG L S, ZHANG L, *et al*. Antibiotics in Soil and Water in China: A Systematic Review and Source Analysis[J]. Environmental Pollution, 2020, 266(Pt 1): 115147.

[25] 陈运杰, 郭欣妍, 杨艺, 等. 玉米根际土壤中大环内酯类抗性基因的分布特征[J]. 生态与农村环境学报, 2019, 35(9): 1182-1189. [CHEN Yun-jie, GUO Xin-yan, YANG Yi, *et al*. Distribution Pattern of Genes Conferring Resistance to Macrolides in Rhizosphere Soil of Maize[J]. Journal of Ecology and Rural Environment, 2019, 35(9): 1182-1189.]

[26] 尹春艳, 骆永明, 滕应, 等. 典型设施菜地土壤抗生素污染特征与积累规律研究[J]. 环境科学, 2012, 33(8): 2810-2816. [YIN Chun-yan, LUO Yong-ming, TENG Ying, *et al*. Pollution Characteristics and Accumulation of Antibiotics in Typical Protected Vegeta-

ble Soils[J].Environmental Science,2012,33(8):2810-2816.]

[27] WEI R C,GE F,ZHANG L L,*et al*.Occurrence of 13 Veterinary Drugs in Animal Manure-amended Soils in Eastern China[J].Chemosphere,2016,144:2377-2383.

[28] 赵方凯,杨磊,李守娟,等.长三角典型城郊土壤抗生素空间分布的影响因素研究[J].环境科学学报,2018,38(3):1163-1171.[ZHAO Fang-kai,YANG Lei,LI Shou-juan,*et al*.Affecting Factors of the Spatial Distribution of Antibiotics in Soils in Typical Periurban Area of Yangtze River Delta[J].Acta Scientiae Circumstantiae,2018,38(3):1163-1171.]

[29] SUN J T,ZENG Q T,TSANG D C W,*et al*.Antibiotics in the Agricultural Soils from the Yangtze River Delta,China[J].Chemosphere,2017,189:301-308.

[30] 潘霞,陈励科,卜元卿,等.畜禽有机肥对典型蔬果地土壤剖面重金属与抗生素分布的影响[J].生态与农村环境学报,2012,28(5):518-525.[PAN Xia,CHEN Li-ke,BU Yuan-qing,*et al*.Effects of Livestock Manure on Distribution of Heavy Metals and Antibiotics in Soil Profiles of Typical Vegetable Fields and Orchards[J].Journal of Ecology and Rural Environment,2012,28(5):518-525.]

[31] 鲍士旦.土壤农化分析[M].3 版.北京:中国农业出版社,2000:33-106.

[32] 张甘霖,龚子同.土壤调查实验室分析方法[M].北京:科学出版社,2012:18-92.[ZHANG Gan-lin,GONG Zi-tong.Soil Survey Laboratory Methods[M].Beijing:Science Press,2012:18-92.]

[33] 周礼恺,张志明.土壤酶活性的测定方法[J].土壤通报,1980,11(5):37-38,49.[ZHOU Li-kai,ZHANG Zhi-ming.Determination Method of Soil Enzyme Activity[J].Chinese Journal of Soil Science,1980,11(5):37-38,49.]

[34] 关松荫.土壤酶及其研究法[M].北京:农业出版社,1986:274-340.

[35] 毛异之,蔡柏岩.土壤中抗生素污染的时空分布和环境行为研究[J].中国农学通报,2021,37(28):68-75.[MAO Yi-zhi,CAI Bai-yan.The Temporal and Spatial Distribution and Environmental Behavior of Antibiotic Pollution in Soil[J].Chinese Agricultural Science Bulletin,2021,37(28):68-75.]

[36] ZHAO F K,CHEN L D,YANG L,*et al*.Effects of Land Use and Rainfall on Sequestration of Veterinary Antibiotics in Soils at the Hillslope Scale[J].Environmental Pollution,2020,260:114112.

[37] 陈佳,姚成硕,林勇明,等.武夷山林地土壤酶活性差异及土壤肥力质量评价[J].山地学报,2021,39(2):194-206.[CHEN Jia,YAO Cheng-shuo,LIN Yong-ming,*et al*.Soil Enzyme Activity Difference in Woodlands,and Soil Fertility Quality Evaluation in Mount Wuyi,China[J].Mountain Research,2021,39(2):194-206.]

[38] 韩旭.微塑料和抗生素对设施土壤理化性质、酶活性及微生物群落特征的影响[D].泰安:山东农业大学,2023.[HAN Xu.Effects of Microplastics and Antibiotics on the Physicochemical Properties,Enzyme Activity,and Microbial Community Characteristics of Facility Soil[D].Tai′an:Shandong Agricultural University,2023.]

[39] 刘欣雨,张建强,黄雯,等.中国土壤中抗生素赋存特征与影响因素研究进展[J].土壤,2021,53(4):672-681.[LIU Xin-yu,ZHANG Jian-qiang,HUANG Wen,*et al*.Occurrence Characteristics and Influencing Factors of Antibiotics in Soils of China:A Review[J].Soils,2021,53(4):672-681.]

[40] 张健,关连珠,颜丽.鸡粪中 3 种四环素类抗生素在棕壤中的动态变化及原因分析[J].环境科学学报,2011,31(5):1039-1044.[ZHANG Jian,GUAN Lian-zhu,YAN Li.Dynamics and Mechanism of Degradation of Three Tetracycline Antibiotics from Chicken Feces in Brown Soil[J].Acta Scientiae Circumstantiae,2011,31(5):1039-1044.]

[41] 朱昶.四环素和土霉素的光降解产物与土壤酶相互作用的研究[D].济南:山东大学,2020.[ZHU Chang.Study on the Interaction between Photodegradation Products of Tetracycline and Oxytetracycline and Soil Enzymes[D].Jinan:Shandong University,2020.]

[42] 阮琳琳,林辉,马军伟,等.土壤中单一及复合抗生素的降解及微生物响应[J].中国环境科学,2018,38(3):1081-1089.[RUAN Lin-lin,LIN Hui,MA Jun-wei,*et al*.Behavior and Ecotoxicity of Single and Mixed Antibiotics in Soils:Degradation and Changes in Microbial Community[J].China Environmental Science,2018,38(3):1081-1089.]

[43] 张文婕,杨莉莉,王金花,等.三种抗生素与铜复合污染对土壤过氧化氢酶活性的影响[J].农业资源与环境学报,2020,37(1):135-143.[ZHANG Wen-jie,YANG Li-li,WANG Jin-hua,*et al*.Effect of Combined Pollution of Three Antibiotics and Cu on Soil Catalase Activity[J].Journal of Agricultural Resources and Environment,2020,37(1):135-143.]

[44] ZHANG Y P,SNOW D D,PARKER D,*et al*.Intracellular and Extracellular Antimicrobial Resistance Genes in the Sludge of Livestock Waste Management Structures[J].Environmental Science & Technology,2013,47(18):10206-10213.

[45] 刘吉强,诸葛玉平,崔丽娜.外源四环素对土壤酶活性和油菜品质的影响[J].应用生态学报,2009,20(4):943-948.[LIU Ji-qiang,ZHUGE Yu-ping,CUI Li-na.Effects of Exogenous Tetracycline on Rape Soil Enzyme Activity and Rape Quality[J].Chinese Journal of Applied Ecology,2009,20(4):943-948.]

[46] 林琳,周启星,安靖.四环素污染对土壤酶活性的影响[R].[出版地不详]:[出版者不详],2011.

[47] 郝建朝,吴沿友,连宾,等.土壤多酚氧化酶性质研究及意义[J].土壤通报,2006,37(3):470-474.[HAO Jian-chao,WU Yan-you,LIAN Bin,*et al*.Properties of Polyphenol Oxidase in Soil and Its Significance[J].Chinese Journal of Soil Science,2006,37(3):470-474.]

[48] 陈智学,谷洁,高华,等.土霉素对堆肥过程中酶活性和微生物群落代谢的影响[J].生态学报,2013,33(21):6957-6966.[CHEN Zhi-xue,GU Jie,GAO Hua,*et al*.Effect of Oxytetraeyeline (OTC) on the Activities of Enzyme and Microbial Community Metabolic Profiles in Composting[J].Acta Ecologica Sinica,2013,33(21):6957-6966.]

作者简介：李影(1979—),女,安徽涡阳人,副教授,博士,主要从事污染生态学与生态毒理学研究。Email：liying791212@126.com

(**责任编辑**：王昌群)